

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 01-117303

(43)Date of publication of application : 10.05.1989

(51)Int.Cl.

H01F 1/04  
G22C 38/00

(21)Application number : 62-274799

(71)Applicant : TAIYO YUDEN CO LTD

(22)Date of filing : 30.10.1987

(72)Inventor : KAINO DAISUKE

FUJII KOJI

SHIMIZU HIROYUKI

## (54) PERMANENT MAGNET

### (57)Abstract:

**PURPOSE:** To decrease high-temperature irreversible demagnetizing factor without accompanying a decrease of maximum energy product  $BH_{max}$  by diffusing Tb, Dy, Al, Ga near the surface of a R-Fe-B based magnet and by providing a layer of a higher intrinsic coercive factor than that inside the magnet.

**CONSTITUTION:** A layer having a higher intrinsic coercive force than that inside a magnet is provided by diffusing at least one of Tb, Dy, Al, and Ga, near the surface of a R(rare earth element)-Fe-B based (R is at least one kind of La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, E; u, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, and Y) magnet. La, Ce and Y are available as R used for a R-Fe-B based magnet. Each can be used singly or jointly mixed. For an intrinsic coercive force  $iH_c$  material formed near the surface of a magnet, Tb, Dy, Al or Ga is available, and this can be used singly or mixed. One example of diffusing the above materials is to perform heat treatment after performing sputtering for these materials as negative pole target materials. This method enables materials to be diffused not only on the surface of a magnet, but to the inward thereof. As a result, a layer having a coercive force higher than that inside the magnet can be formed.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

## ⑫ 公開特許公報(A)

平1-117303

⑪ Int. Cl.<sup>4</sup>H 01 F 1/04  
C 22 C 38/00

識別記号

3 0 3

庁内整理番号

H-7354-5E  
D-6813-4K

⑬ 公開 平成1年(1989)5月10日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑭ 発明の名称 永久磁石

⑮ 特 願 昭62-274799

⑯ 出 願 昭62(1987)10月30日

⑰ 発 明 者	戒 能	大 助	東京都台東区上野1丁目2番12号	太陽誘電株式会社内
⑱ 発 明 者	藤 井	広 史	東京都台東区上野1丁目2番12号	太陽誘電株式会社内
⑲ 発 明 者	清 水	弘 之	東京都台東区上野1丁目2番12号	太陽誘電株式会社内
⑳ 出 願 人	太陽誘電株式会社		東京都台東区上野6丁目16番20号	
㉑ 代 理 人	弁理士 北村 欣一		外2名	

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

永久磁石

## 2. 特許請求の範囲

R-Fe-B系(RはLa、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、Yのうち少なくとも1種類)磁石の表面付近にTb、Dy、Al、Gaのうち少なくとも1種類を拡散させて磁石内部よりも固有保磁力の高い層を設けたことを特徴とする永久磁石。

## 3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、R-Fe-B系の永久磁石に関し、更に詳しくは高温不可逆減磁率の小さな永久磁石に関する。

(従来の技術)

従来、この種の永久磁石の一例としては組成比Nd<sub>12.4</sub>Dy<sub>1.4</sub>Fe<sub>78.2</sub>B<sub>7.1</sub>Al<sub>0.9</sub>から成るR(希土類元素ここではNd:ネオジムとDy:ジスプロシウム)-Fe(鉄)-B(ホウ素)系の焼結型

磁石が知られており、該磁石は最大エネルギー積BH<sub>max</sub>が35MGOeと極めて高い優れた磁気特性を有する。

(発明が解決しようとする問題点)

しかしながら前記R-Fe-B系磁石はキュリー点が低く熱安定性が悪いため高温不可逆減磁率が-15%と極めて大きいという問題がある。そこで前記R-Fe-B系磁石の希土類元素成分中のNd量の一部をDyに置換し該Dy量を増加せしめることが考えられる。そして前記R-Fe-B系磁石中の両希土類元素組成比Nd<sub>12.4</sub>:Dy<sub>1.4</sub>を例えばNd<sub>11.2</sub>:Dy<sub>2.6</sub>としたとき固有保磁力I<sub>Hc</sub>が増大し高温不可逆減磁率は-3%と極めて小さくなるが、それに伴って残留磁束密度B<sub>r</sub>が小さくなり、その結果最大エネルギー積BH<sub>max</sub>が大幅に低下するという問題がある。

本発明は、最大エネルギー積BH<sub>max</sub>の低下を伴うことなく高温不可逆減磁率の小さなR-Fe-B系の永久磁石を提供することを目的とする。(問題点を解決するための手段)

本発明者等は、前記目的を達成する永久磁石について鋭意検討した結果、R-Pe-B系の永久磁石の表面部の減磁が磁石内部よりも低い温度で生じ、該表面部の減磁が永久磁石の高温不可逆減磁率を大きくしていることを知見し、更にR-Pe-B系の永久磁石の表面付近に磁石内部よりも固有保磁力 $I_{Hc}$ の高い層を設けることにより、最大エネルギー積 $BH_{max}$ の低下を伴うことなく高温不可逆減磁率が小さくなることを知見した。

本発明は、前記知見に基づいてなされたものであって、R-Pe-B系(RはLa、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、Yのうち少なくとも1種類)磁石の表面付近にTb、Dy、Al、Gaのうち少なくとも1種を拡散させて磁石内部よりも固有保磁力の高い層を設けたことを特徴とする。

本発明のR(希土類元素)-Pe(鉄)-B(ホウ素)系磁石に用いるR(希土類元素)としてしてはLa(ランタン)、Ce(セリウム)、

Pr(プラセオジウム)、Nd(ネオジウム)、Pm(プロメチウム)、Sm(サマリウム)、Eu(ユーロピウム)、Gd(ガドリニウム)、Tb(テルビウム)、Dy(ジスプロシウム)、Ho(ホルミウム)、Er(エルビウム)、Tm(ツリウム)、Yb(イットルビウム)、Lu(ルテチウム)、Y(イットリウム)があり、夫々単独に用いてもよいし、混合併用してもよい。また磁石の表面付近に形成する固有保磁力 $I_{Hc}$ 材としてはTb(テルビウム)、Dy(ジスプロシウム)、Al(アルミニウム)、Ga(ガリウム)があり、夫々単独に用いてもよいし、混合併用してもよい。

磁石の表面付近に磁石内部よりも高い固有保磁力の層を設けるために前記材料を拡散する方法としては例えばこれら材料を陰極ターゲット材として用い真空度 $4 \sim 6 \times 10^{-6}$ Torr中でスパッタリングを行った後、熱処理を行う方法が挙げられる。この方法によって前記材料は磁石の表面のみならず磁石表面より100  $\mu$ も内方の粒界および非磁性層部分まで拡散される。

#### (実施例)

次に本発明の実施例1、2、3、4および比較例について説明する。

##### 実施例1

まず、Nd(ネオジウム)、Dy(ジスプロシウム)、Fe(鉄)、B(ホウ素)、Al(アルミニウム)から成る組成比 $Nd_{1.2}, Dy_{1.4}, Fe_{7.8}, B_1, Al_{0.6}$ の合金インゴットを $N_2$ 雰囲気中でスタンプミルにより粉砕し、更に同じ $N_2$ 雰囲気中でジェットミルにより微粉砕して平均粒径3.1  $\mu$ の粉末を得た。

続いて得られた粉末を15kOeの磁場中で配向した状態で磁界に垂直方向に1.5ton/cm<sup>2</sup>の圧力で成形体を形成した。

更に形成された成形体をArガス雰囲気中で温度1,100℃で1時間焼成して、長さ1cm幅1.1cm厚さ0.2cmの焼結体を得た。

次に得られた焼結体を陽極とし、Dy(ジスプロシウム)金属を陰極ターゲット材として、真空度 $5 \times 10^{-6}$ Torr中で30分間スパッタリングを

行い焼結体の表面全面に亘って厚さ0.5  $\mu$ のDyの薄膜層を形成した。

続いて薄膜層を有する焼結体をArガス雰囲気中で温度970℃で1時間の熱処理を行った後、更に温度850℃で1時間の熱処理を施した。

上記工程で作成した永久磁石の残留磁石密度 $B_r$ (kG)、固有保磁力 $I_{Hc}$ (kOe)、最大エネルギー積 $BH_{max}$ (MGOe)、不可逆減磁率(%)を調べたところ、表に示す結果が得られた。尚表における $B_r$ 、 $I_{Hc}$ 、 $BH_{max}$ の測定時の温度は25℃である。また不可逆減磁率の測定時の温度は180℃とした。

##### 実施例2

陰極ターゲット材としてTb(テルビウム)金属を用い、焼結体の表面全体に亘って厚さ0.5  $\mu$ のTbの薄膜層を形成した以外は実施例1と同一の方法で永久磁石を作成した。またその特性を実施例1と同一方法で測定したところ、表に示す結果が得られた。

##### 実施例3

まず、Nd（ネオジム）、Dy（ジスプロシウム）、Fe（鉄）、B（ホウ素）、Al（アルミニウム）から成る組成比  $Nd_{12.4}Dy_{11.4}Fe_{78.2}B_8Al_{0.8}$  の合金インゴットを  $N_2$  雰囲気中でスタンプミルにより粗粉砕し、更に同じ  $N_2$  雰囲気中でジェットミルにより微粉砕して平均粒径  $3.1 \mu$  の粉末を得た。

続いて得られた粉末を  $15kOe$  の磁場中で配向した状態で磁界に垂直方向に  $1.5 ton/cm^2$  の圧力で成形体を形成した。

更に形成された成形体を  $Ar$  ガス雰囲気中で温度  $1120^\circ C$  で1時間焼成して、長さ  $1 cm$  幅  $1.1 cm$  厚さ  $0.2 cm$  の焼結体を得た。

次に得られた焼結体を陽極とし、Al（アルミニウム）金属を陰極ターゲット材として、真空度  $5 \times 10^{-6} Torr$  中で30分間スパッタリングを行い焼結体の表面全面に亘って厚さ  $0.5 \mu$  のAlの薄膜層を形成した。

続いて薄膜層を有する焼結体を  $Ar$  ガス雰囲気中で温度  $970^\circ C$  で1時間の熱処理を行った後、

で成形体を形成した。

更に形成された成形体を  $Ar$  ガス雰囲気中で温度  $1100^\circ C$  で1時間焼成して、長さ  $1 cm$  幅  $1.1 cm$  厚さ  $0.2 cm$  の焼結体を得た。

次に得られた焼結体を  $Ar$  ガス雰囲気中で温度  $900^\circ C$  で1時間の熱処理を行った後、更に温度  $800^\circ C$  で1時間の熱処理を施した。

上記工程で作成した永久磁石の特性を実施例1と同一方法で測定したところ、表に示す結果が得られた。

表

	Br [kG]	1HC [kOe]	BH <sub>max</sub> [MG0e]	不可逆減磁率 [%]
実施例 1	12.0	18.0	35	- 3
実施例 2	12.0	18.0	35	- 3
実施例 3	12.0	18.0	35	- 3
実施例 4	12.1	17.9	35	- 4
比較例	12.1	18.1	35	- 15

更に、上記実施例1で得られた永久磁石を切断して厚み方向の断面を露出させ、磁石内部と、

更に温度  $400^\circ C$  で1時間の熱処理を施した。

上記工程で作成した永久磁石の特性を実施例1と同一方法で測定したところ、表に示す結果が得られた。

#### 実施例 4

前記実施例1の工程と同一方法で作成した磁石の表面全面に亘って  $10 \mu$  ずつ研磨して永久磁石を作成した。またその特性を実施例1と同一方法で測定したところ、表に示す結果が得られた。

#### 比較例

まず、Nd（ネオジム）、Dy（ジスプロシウム）、Fe（鉄）、B（ホウ素）、Al（アルミニウム）から成る組成比  $Nd_{12.4}Dy_{11.4}Fe_{78.2}B_8Al_{0.8}$  の合金インゴットを  $N_2$  雰囲気中でスタンプミルにより粗粉砕し、更に同じ  $N_2$  雰囲気中でジェットミルにより微粉砕して平均粒径  $3.1 \mu$  の粉末を得た。

続いて得られた粉末を  $15kOe$  の磁場中で配向した状態で磁界に垂直方向に  $1.5 ton/cm^2$  の圧力

磁石表面より  $50 \mu$  内側について、それぞれの粒界および非磁性層部分に偏析するDyの量を分析して比較した結果、磁石内部よりも磁石表面から  $50 \mu$  内側のほうに多量にDyが偏析していた。

同様にして、上記実施例2、3および比較例で得られた各永久磁石についてもそれぞれの粒界および非磁性層部分に偏析するTb、Al、Dyの量を分析して比較した結果、実施例2、3で得られた各永久磁石については磁石表面から  $50 \mu$  内側のほうに多量にTb、Alが偏析していたが、比較例で得られた永久磁石については、磁石内部と磁石表面から  $50 \mu$  内側とで偏析するDyの量に差がみられなかった。

表から明らかなように実施例1、2、3、4の高温不可逆減磁率は比較例の高温不可逆減磁率に比して極めて小さくなった。従って実施例1、2、3、4の永久磁石はその表面付近にDy、Tb、Alのいずれか1種類が拡散して固有保磁力の高い層が設けられていることが確認出来、また実施例1、2、3、4の永久磁石は最大エネ

ルギー積  $BH_{\max}$  の低下がなく、かつ高温不可逆減磁率を減少させたことが確認された。

(発明の効果)

本発明によれば、 $R-Po-B$ 系 ( $R$ はLa、Ce、Pr、Nd、Pm、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu、Yのうち少なくとも1種類) 磁石の表面付近にTb、Dy、Al、Gdのうち少なくとも1種類を拡散させて磁石内部よりも固有保磁力が高い層を設けるようにしたので、最大エネルギー積の低下を伴うことなく高温不可逆減磁率の小さな $R-Po-B$ 系の永久磁石を提供することが出来る。

特許出願人 太陽誘電 株式会社  
代理人 北村 欣一

外2名

